



TITLE:

# <綜説>昆虫毒物學的に見た殺虫劑 組合せの諸問題 II

AUTHOR(S):

酒井, 清六

---

CITATION:

酒井, 清六. <綜説>昆虫毒物學的に見た殺虫劑組合せの諸問題 II. 防虫科学 1949, 14: 44-55

ISSUE DATE:

1949-12-30

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/156578>

RIGHT:

## 綜 説

Problems of the combinations of two or more insecticides from the standpoint of insect toxicology. II. Seiroku SAKAI *Botyu Kagaku* 14 : 44-55 1949.

## 8. 昆虫毒物學的に見た殺虫劑組合せの諸問題 II. 酒 井 清 六

## 1. 緒 論

連合作用に関する理論的な問題は第1報で論議した。此処では主に 1949 年以後の殺虫劑組合せの實際的例証を概観する。連合作用の研究は動的な問題であり、Clark (1937) が指摘した様に、現象が明瞭で測定し易い薬劑を対象として研究することが必要と思う。

この研究は Bliss (1939) の後 Finney (1942)、Wadley (1945) や Plackett et Hewlett (1948) に依つても評價され、これらの方法と共に最近発達した Coon (1944) の螢光性指示薬や Hansen et al. (1944) の放射性物質添加に依る X 線フィルムに依る研究方法や Hutzel (1942) 等の Kymograph, Oscillograph 等に依る描写実験法はこの研究に取り入れらるべき方法であらう。Wardle (1929) は 2 種の殺虫劑を組合せたものを組合せ殺虫劑 Combination insecticide と呼んで、1) 消化中毒劑相互の組合せ、2) 接触中毒劑相互の組合せ、3) 煙蒸劑相互の組合せ、4) 消化中毒劑と接触中毒劑との組合せ、5) 消化中毒劑と煙蒸劑との組合せ、6) 接触中毒劑と煙蒸劑との組合せの 6 様式を指摘した。

## 2. 殺虫劑の組合せ

## 1) 煙蒸劑相互の組合せ

煙蒸劑相互を組合せて、煙蒸劑の効果を強化し、又は可燃、爆発の危険、薬害を避けることは古くから行われているが、実用上には余り優れた組合せは見出されていない。生体の毒物攝取の機能を促進するため、刺戟劑を作用させることの一つに、煙蒸劑に CO<sub>2</sub> を添加して昆虫の呼吸系統を刺戟し、呼吸機能を促進させることにより毒物攝取の効果を挙げることである。CO<sub>2</sub> の影響は初期の刺戟効果と作用後に現れる麻痺作用の 2 面がある。人類やその他の温血動物の呼吸作用に対する CO<sub>2</sub> の影響は古くから研究され、その瓦斯量に應じて、呼吸中樞を刺戟し、麻痺又は窒息的に作用することが知られている。Hazelhoff (1926, 1929) は昆虫類に於ける氣門の開口は常に氣門附近の CO<sub>2</sub> の割合に據つて調節され、呼吸機能を刺戟促進することを指摘し、この作用を殺虫劑毒性の促進に利用することを暗示した。Willis (1925) はバツタの 1 種 *Melanoplus differentialis* 及び *M. femur-rubrum* の兩種の呼吸運動を研究し、その運動は胸環節の神経

球の刺戟によつて行われ、神経刺戟は CO<sub>2</sub> が体液中に入り、血液の水素イオン濃度を高めることか、又は血液に溶けずに、不溶解の儘の CO<sub>2</sub> に依つて血液の pH が増大するからであると述べた。この関係は哺乳動物の呼吸中樞刺戟機序と類似している。Stahn (1928) は昆虫体に対する CO<sub>2</sub> の作用機序を論じ、1. 有効な刺戟は神経中樞の pH に関連する。2. 氣管の末端部に於て、瓦斯は特殊な刺戟作用を起す。3. 瓦斯はある種の末梢受容器に作用するという 3 つの可能性を指摘した。その後この研究は追試肯定された。McGovran (1932) は濃度 15% の CO<sub>2</sub> を含有する空氣中に於いて、バツタの 1 種 *Arphia sulphurea* の氣管の通氣率が正常の個体より約 20 倍以上、或いは、1000% 以上も促進することを観察し、濃度 1% の CO<sub>2</sub> では平均約 5% しか促進しなかつたと報告した。Mellanby (1934) は空氣中に 5% の CO<sub>2</sub> が添加された時、ゴキブリ *Tenebrio molitor* 等の昆虫の氣門が永く開放した儘であり、同じことは酸素が 1% 以下の時にも観察した。Kitchel & Hoskin (1935) はゴキブリの 1 種 *Nyctobora noctivaga* の呼吸作用に及ぼす色々の濃度の CO<sub>2</sub> の影響を研究し、低濃度の CO<sub>2</sub> は直接氣管の通氣率を促進し、その反應速度は CO<sub>2</sub> の濃度に関係のあることを見出し、50 又は 15% の CO<sub>2</sub> では、通氣率は正常の比率に対し、約 3 倍、5 倍又は 6 倍であつた。空氣中に CO<sub>2</sub> を 20 乃至 30% 添加した混合瓦斯では初期には通氣率が促進するが、その後、特に 30% 添加では低下する。更に 50% の濃度の CO<sub>2</sub> を添加すると、もはや、初期の通氣率促進は認められず、直接に低下したと報告した。Stahn (1928) の研究では、ナナフシの 1 種 *Dixippus morosus* の前胸に分布する第 2 次呼吸中樞は 0.2 乃至 3.0% の CO<sub>2</sub> に刺戟され、第 1 次呼吸中樞は 12% 乃至 15% の CO<sub>2</sub> に刺戟されることを観察した。神経中樞の部位に依つても CO<sub>2</sub> の刺戟作用は異なると考えられる。

Wigglesworth (1931) は氣管系及び表皮に於ける酸素と CO<sub>2</sub> との拡散率の相違に意義を見出し、拡散率は酸素の場合より CO<sub>2</sub> の方が 35 倍も高いことを観察した。昆虫が異常に高濃度の CO<sub>2</sub> に曝露されると、虫体内に拡散に據る CO<sub>2</sub> は酸素より多量に侵入し、そのため、昆虫の血液及び神経中樞の酸度が増大

し、呼吸系を刺激促進することを報じた。以上の様な CO<sub>2</sub> の生理作用を利用して、煙蒸剤の効果を挙げることは古くから行われている。煙蒸剤と CO<sub>2</sub> とを組合せて作用することは Cotton & Young (1929) に依つて実施された。コクメストモドキの 1 種 *Tribolium confusum* 及びコクゾウ *Sitophilus oryzae* に対し、CO<sub>2</sub> と Ethylene dichloride, Ethylene oxide, Methyl chloroacetate, 2 硫化炭素及び chloropicrin とを組合せ、CO<sub>2</sub> を添加すると効果が挙ることを見出した。CO<sub>2</sub> は可燃性煙蒸剤の危険を消失又は減少させる附加的な役割をももっている。Cotton (1930) は *T. confusum* を用い、タンク内の煙蒸で、その中の落花生の瓦斯吸着を減じ、そのため、2 硫化炭素、Chloropicrin の毒性を促進することを見出した。Back, Cotton & Ellington (1930) は CO<sub>2</sub> の添加に據つて Ethylene oxide の毒性が増大することを追試した。Cotton (1930) は 30°C, 10 分煙蒸で *T. confusum* の成虫を用い、Chloropicrin 16.5 mg/L, Ethylene oxide 24 mg/L, 2 硫化炭素 88 mg/L に CO<sub>2</sub> の薬量を 0 から 40 pounds まで変化して添加させた。その結果は何れも毒性は増大し、Ethylene oxide では 16 mg/L の薬に 100 立方 Feet に対し 30 pounds の CO<sub>2</sub> を添加したもので、死亡率は 26% で、空気中の O<sub>2</sub> を 0.7% だけ減じたものは 50% で、その 0.7% 減じた空气中に更に 30 pounds の CO<sub>2</sub> を添加したものでは死亡率は 100% を示した。更に毒性を最大に促進する CO<sub>2</sub> の量はその煙蒸剤の種類に依り異なることを報じた。Jones (1935) は *T. confusum* の卵、幼虫、成虫を使用し、30°C で 5 時間、50%, 75%, 100% の CO<sub>2</sub> を添加した蟻酸メチル 5 mg/L を以て煙蒸した。その結果 100% の CO<sub>2</sub> では、10 時間で 100% 死亡するが、蟻酸メチルを添加したものは 4 時間しか要しなかつた。75% の CO<sub>2</sub> に 25% の空気では 20 時間要するものが、蟻酸メチルの添加に依つて、6 時間で済んだ。50% の CO<sub>2</sub> に 50% の空気では、44 時間要するものが蟻酸メチルの添加に依り 8 時間しか要しなかつた。50% の CO<sub>2</sub> に蟻酸メチルを 10 mg/L の率で添加したものと 5 mg/L で添加したものでは、前者は 4 時間、後者は 8 時間であり、5 mg/L の率では幼虫 100% 致死は 3 時間、卵では 6 時間を要した。Cupples, Yust & Hiley (1936) は赤介殺虫の防除に CO<sub>2</sub> を添加した青酸瓦斯を用い、その毒性は促進した。更に Jones (1938) はそれまでになされた混合瓦斯の研究を批判した有用な論文を公表した。その実験は *T. castaneum* の成虫を用いて、蟻酸メチル, Ethylene oxide 及び臭化メチルの単独に於ける毒性を 27°C, 5 時間煙蒸で試験し、更に CO<sub>2</sub> を 1, 5, 10, 20, 40, 60, 80, 99.8% の割合で夫々の煙

蒸剤に添加し、その混合瓦斯の毒性を比較した。その結果は次の通りである。

第 1 表. *T. castaneum* 100.50% 致死に要する最小薬量 (mg/L)

煙 蒸 剤	50%	100%
臭 化 メ チ ル	6.13	8.75
蟻 酸 メ チ ル	17.81	25.00
Ethylene oxide	73.44	17.50

第 2 表. 種々の割合で CO<sub>2</sub> を添加した煙蒸剤で *T. castaneum* 100.50% 致死を得る時間(分)

混合瓦斯の CO <sub>2</sub> %	蟻酸メチル 25.0 mg/L		Ethylene oxide 17.5 mg/L		臭化メチル 8.75 mg/L	
	50%	100%	51%	100%	50%	100%
0.0	150	300	150	300	270	300
1.0	125	210	150	300	190	270
5.0	45	150	82	180	145	240
10.0	25	120	36	90	125	180
20.0	19	90	22	45	100	150
40.0	17	45	22	45	110	180
90.0	17	45	17	45	140	210
80.0	17	45	22	45	145	240
99.8	17	45	22	45	190	270

この結果よりある範囲の濃度の CO<sub>2</sub> を添加すると煙蒸剤の毒性を促進することが証明される。CO<sub>2</sub> 添加に依る刺激効果は臭化メチルよりも蟻酸メチル Ethylene oxide の方が顕著である。蟻酸メチル, Ethylene oxide, 臭化メチルの毒性を促進する濃度は CO<sub>2</sub> が約 40, 20, 及び 10% の時最大であることが指摘される。これ以上の過剰の CO<sub>2</sub> の添加は却つて混合瓦斯の毒性を減少させることが見られる。これらの一連の実験と反対に CO<sub>2</sub> の添加により寧ろ煙蒸剤の毒性が減少することを報告したものも 2, 3 知られている。

Campbell (1932) や Cotton (1932) に據る研究は青酸瓦斯の殺虫作用が CO<sub>2</sub> の添加で却つて促進しないことを指摘し、Pratt, Swain & Eldred (1933) はテシウムシの 1 種 *Hyphodamia convergens* に対する 0.2% の青酸瓦斯の毒性は 1% と 99.8% もの CO<sub>2</sub> の添加により非常に減少されることを見出し、CO<sub>2</sub> の麻痺作用に據ると指摘した。その後 CO<sub>2</sub> の添加は実用的に利用され、Balzer (1942) は貯蔵害虫の防除に、Ethylene oxide 1 容に、CO<sub>2</sub> 9 容を真空室中で使用し効果を挙げ、Chakrovorti (1943) は印度に於いて同じく貯蔵害虫の真空室煙蒸の方法と技術とを論じ、蟻酸メチル, Ethylene oxide と CO<sub>2</sub> とを重量比で夫々 1:9 に混合して煙蒸し、毒性を促進さ

せている。Bovingdon & Coyne (1944) はノコギリコクヌスト *Oryzaephilus surinamensis* の防除に、Trichloroacetonitrile を用い、それに 10% 乃至それ以上の  $\text{CO}_2$  を添加することにより、その毒性を増大させた。Glass (1944) も同様な研究を試みた。要するに、 $\text{CO}_2$  を添加することは呼吸系統の刺激に基礎付けられている。4 塩化炭素  $\text{CCl}_4$  は古くから毒力促進のため、又は可燃、爆発を避けるため、多くの煙蒸剤と混合され、その補助瓦斯として知られている。 $\text{CCl}_4$  が毒力を促進する原因は知られていないが、その溶解性の大きなること、高等動物の結果では、溶血作用、脂肪浸潤、脂肪変性作用を有すること等の事実と最近の Hurst, Wigglesworth, Webb 等の一連の研究とを考え合せた時、興味深いものがある。今日、混合煙蒸剤は大別して、1)  $\text{CO}_2$  との組合せ 2) 補助瓦斯  $\text{CCl}_4$  との組合せ、3) 青酸瓦斯の薬量、又は薬害を減ずるため、他の瓦斯と青酸瓦斯との組合せ、4) 煙蒸剤相互の組合せの 4 群を認めることが出来る。

Neifert 及びその共同研究者 (1925) は貯蔵害虫に対する種々の有機煙蒸剤を研究し、コクゾウの驅除に醋酸エチルと  $\text{CCl}_4$  との混合瓦斯の有望なことを見出した。Back & Cotton (1925) も醋酸エチルと  $\text{CCl}_4$  との混合瓦斯の有効なことを認めたが、穀物に不快臭を與えるので実用化されなかつた。 $\text{CCl}_4$  と Ethylene dichloride との組合せは滲透力強く、不燃性で実用化されている。その毒力は多くの研究者に依つて検討され、その効果は協力的又は拮抗的に研究者に依り必ずしも一致しない。Cotton & Roark (1927) は Ethylene dichloride と  $\text{CCl}_4$  とを容積比で 3:1 に混合し、カツオブシムシの 1 種 *Anthrenus vorax*、カツオブシムシの 1 種、*Attagenus piceus*、イガ *T.n.ola biselliella* を驅除する目的で  $18.3^\circ\text{C}$  及び  $23.9^\circ\text{C}$  で 24 時間煙蒸をした。その効果は単独の薬劑に比し、稍大であつた。Shepard & Lindgren (1934) は 25% の  $\text{CCl}_4$  を含んだ混合瓦斯をコクゾウ及び *T. confusum* に用いたが毒性は低化し、拮抗的效果を示した。Richardson & Casanges (1942) は同じく容積比で 3:1 に混合し、*T. confusum* を対象とした。 $25^\circ\text{C}$ 、5 時間煙蒸で、M.L.D. と LD 95 とは Ethylene dichloride 単独の場合は夫々 6 mg/L、12 mg/L であつたが、 $\text{CCl}_4$  との混合瓦斯の場合は 9 mg/L、14 mg/L で不燃性は増加したが、その毒性は却つて減少した。然し、Annand (1942) に依れば、この組合せは貯蔵穀物の発芽を害しないことが示された。Richardson (1943) は容積比 3:1 の標準混合でトコジラミ *Cimex lectularius* の卵、幼虫、成虫を用い、 $25^\circ\text{C}$ 、5 時間煙蒸をした。その効果は単独、混合何れの場合も同じで、LD 95 乃至 100 は 50 mg/L 以上であつた。

Jefferson (1943) は連合作用研究を目的として *T. castaneum* に対する臭化メチル、蟻酸メチル、Ethylene dichloride と  $\text{CCl}_4$  との混合瓦斯を研究した。この報告は Gunderson (1940)、Swisher (1944) の研究と共に優れた論文である。供試薬劑は蒸溜に依り純化し、その屈折率を決定した後使用した。小麦粉で飼育し、均等棲息群の 2 乃至 6 週間の老熟幼虫を各試験毎に 50 匹を使用し、煙蒸は 5.5 l フラスコで行い、薬劑はアンプル破壊式で、フラスコ内部にカード式迴轉装置を取り付け、一様に拡散させた。煙蒸剤の混合は毒性に基礎を置き、M.L.D. の割合で混合した。実験結果は Bliss (1935) の方法で分析した。実験には単独薬劑と混合薬劑との 2 法を用い、Ethylene dichloride と  $\text{CCl}_4$  との混合は 1:1、1:3、3:1、が用いられた。その結果、拮抗作用は 1:1、1:3、の Ethylene dichloride +  $\text{CCl}_4$  の場合に示され、協力作用は 3:1 の場合に示されたと報じた。然し、両薬劑の M.L.D. は異り、死亡率 16% の所で両曲線は交叉して、その傾斜は異り、M.L.D. の割合が總ての死亡率の点で Equitoxic と言うことは認められない。Cotton, Walkden & Schwitzgebel (1944) は *T. confusum* の防除に、予め、1000 bushels の小麦に 4 乃至 6 U. S. gallons の割合で容積比 3:1 の Ethylene dichloride +  $\text{CCl}_4$  混合瓦斯で煙蒸したものはその小麦中吸收瓦斯で持続的效果を持ち、尚発芽を害さないことを報告した。その他、Crowly (1939)、Mullis (1945)、Walkden & Schwitzgebel (1946)、Wels & Mills (1949)、Richardson (1943) 等もこの標準混合瓦斯が貯蔵害虫の驅除に有効なことを報じているが、Parkin (1945) はコクゾウ、グラナリアコクゾウ *Calandra granarium* ヒメアカカツオブシムシ *Trogoderma granarium* の防除に容積比で 3:1 の Ethylene dichloride + tetrachlorethylene の混合瓦斯を使用した。その結果は 3:1 の Ethylene dichloride +  $\text{CCl}_4$  混合瓦斯より有毒であつた。グラナリアコクゾウに対する 100% 死亡は  $20^\circ\text{C}$  で 1 pound 当り、約 1500 mg-時間であり、Ethylene dichloride の割合が増加するにつれて、その殺虫力も促進した。100 及び 50% 死亡率に対する濃度  $\times$  時間は 1 立当り、1100 及び 490 Mg-時間 で示された。その他  $\text{CCl}_4$  と Ethylene 系誘導体及び Nitrile 系化合物等との混合瓦斯が昨年に研究されている。Shepard & Lindgren (1934) は 25% の  $\text{CCl}_4$  と Propylene dichloride との混合瓦斯をコクゾウ及び *T. confusum* に用い、拮抗的效果を得た。Cotton (1938) は貯蔵害虫の驅除に 2 硫化炭素及び亜硫酸瓦斯に  $\text{CCl}_4$  を混じてその点火性を減少させた。Richardson (1943) はトコジラミの驅除に容積比で 1:1 の  $\text{CCl}_4$  と Acrylonitrile とを混じて驅

除したが、その結果は単独のものより毒性が減じている。Acrylonitrile はトコジラミに効果ある燻蒸剤であることを報じた。Cotton & Young (1943) は 24 時間 22.2°C でコクゾウ及び *T. confusum* の燻蒸に容積比で同量の Acrylonitrile 及び 1:19 の  $\text{CCl}_4$  + 97% Trichloroacetoneitrile の混合瓦斯を用いた。この結果は前者の様に、単独のものに比し、毒性は減じたが、 $\text{CCl}_4$  に依り引火性は遙かに減少した。Alvarez Aparicio (1943) は貯蔵コアの害虫コナマダラメイガ *Ephestia cautella*, 等の駆除に、20% の  $\text{CCl}_4$  を添加した 2 硫化炭素との混合瓦斯を用い、可燃性を減少させた。然し、この混合瓦斯は卵には無効なため、完全駆除には、反復燻蒸を施行する要ありと報じた。Glass (1944) は 6 立の貯蔵器中に小麦 800 g を入れ、更に *T. confusum* の成虫を放ち、これを Acrylonitrile +  $\text{CCl}_4$  (容積比 5:5) との混合瓦斯で燻蒸した。Richardson & Walkden (1945) は *T. castaneum*, ノコギリコクヌスト, コクゾウの駆除に  $\beta$ -Methyl allyl chloride を用い、その可燃性を消失させるために種々の容積比で  $\text{CCl}_4$  を添加した。この実験は  $\beta$ -Methyl allyl chloride +  $\text{CCl}_4$  を 75:25, 50:50, 16.7:83.3 の混合比で燻蒸し、単独の毒性と比較した。その結果 75:25 の組合せは Methyl allyl chloride 単独の毒性と区別出来ず、可燃性も減少したそれ以上に  $\text{CCl}_4$  を添加すると  $\text{CCl}_4$  単独の毒性に接近した。実際には貯蔵穀物 1000 bushels 当り、2 gallons の 20%  $\beta$ -Methyl allyl chloride を用い、この濃度では発芽を害せず、害虫を駆除し得ると報じた。Richardson (1943) は *T. castaneum*, ノコギリコクヌストを駆除するために、30°C, 24 時間燻蒸で、容積比 1:4 の割合で、2 硫化炭素と  $\text{CCl}_4$  との混合瓦斯を用い、 $\text{CCl}_4$  の毒力と略等しい結果を得た。更に、2 硫化炭素 + Dichloronitroethane +  $\text{CCl}_4$  の 3 成分の混合瓦斯で燻蒸した結果、15 乃至 20% の Dichloronitroethane を含有する混合瓦斯はノコギリコクヌストに対し、最も有効な結果を得た。Walkden & Schwitzgebel (1949) は貯蔵害虫の駆除に容積比 9:1 の  $\text{CCl}_4$  + Ethylene dibromide との混合瓦斯を 1000 bushels 当り、2 乃至 4 U.S. gallons の率で燻蒸し、好結果を得た。又 1:1 の Acrylonitrile +  $\text{CCl}_4$  の混合瓦斯の試験も良好であつた。Cotton & Walkden (1940) は貯蔵害虫に対する 26.7°C 24 時間燻蒸で、21 個の Nitrile 化合物の最小致死量を決定し、更に  $\text{CCl}_4$  と各種の Nitrile 化合物との混合物を 15.6°C 乃至 26.7°C で 100 bushels の小麦に対し、1 U.S. gallon の率で燻蒸した。供試昆虫にはコクゾウ, コメノヒメマキムシ, *Latheticus oryzae*, ナガシクイ *Rizopertha dominica*, カクムネヒラタムシの 1 種

*Laemophiloeus minutus*, *T. castaneum*, ノコギリコクヌストを小麦中の種々の深さに埋没して用いた。死亡率は燻蒸 72 時間後に調査し、2-Chloroacrylonitrile, 2-Chloroacetoneitrile, 2, 2, 3-Trichloropropionitrile 及び 2, 2, 3-Trichlorobutyronitrile の死亡率は 7 feet の深さで、夫々 100, 93, 95, 93 で、12 feet では、93, 97, 91, 90% で  $\text{CCl}_4$  の単独の死亡率は 90% であつた。貯蔵小麦の上層部の燻蒸は 2-Chloroacrylonitrile +  $\text{CCl}_4$  の混合瓦斯を、底部には、2, 2, 3-Trichlorobutyronitrile を 5% 含有した  $\text{CCl}_4$  の混合瓦斯を使用することが良好な結果を得た。Bare (1943) は貯蔵煙草の害虫マダラメイガの 1 種 *Ephestia elutella* 及びダバコシバンムシ *Lasioderma serricorne* に対して acrylonitrile +  $\text{CCl}_4$  (容積比 50:50) を使用し、Trichloroacetoneitrile や青酸瓦斯より有効なことを認めた。Buckley (1949) は製粉煙蒸に就いて Ethylene dichloride, Ethylene dibromide, 2 硫化炭素及び Acrylonitrile と  $\text{CCl}_4$  とを夫々混合し、効果を挙げた。

青酸瓦斯 HCN に他の薬剤を混合することは古く Brinley & Baker (1927) は少量の醋酸メチルを HCN に添加するとその毒性が促進することを見出した。Pratt 及びその共同研究者 (1933) はこの線に沿つて研究を進め、テントウムシの 1 種 *H. convergens* に対する HCN の暴露時間を短縮する幾らかの化合物を見出した。これらはそれ自身相当毒力が強く、尙刺激効果を与える薬剤である。その効果の大なるものから順に挙げると、Salicyl aldehyde, Benzaldehyde, Ethyl thiocyanate, Allyl-isothiocyanate, Thiophenol, Benzyl bromide, Perchlor methyl mercaptan である。更に Pratt et al. (1935) は Methyl thiocyanate が柑橘の介殼虫を駆除する HCN の毒性を促進することを見出したが、これは薬害が激しかった。Cupples, Yust & Hiley (1936) はカリブホルニアアガカイガラ *Aonidiella aurantii* の駆除に HCN を用い、これに Ether,  $\text{CCl}_4$  2 硫化炭素を添加したが余り効果がなかつた。Johnson (1939) はマメコガネ *Popillia japonica* の駆除に対し、HCN と臭化メチルとの混合物を用い、協力的効果のあることを見出し、特許を得た。その後 Yust, Busbey & Howard (1942) は *A. aurantii* の駆除に HCN 単独の瓦斯と臭化メチル添加の混合瓦斯との比較を、25°C 40 分燻蒸で行つた。その結果 1.16 mg/L HCN と 70 mg/L 臭化メチルは等死亡率を示し、0.58 mg/L HCN + 35 mg/L  $\text{CH}_3\text{Br}$  は協力作用が見られ、0.45 mg/L HCN + 30 mg/L  $\text{CH}_3\text{Br}$  は拮抗作用が認められた。その他燻蒸剤と揮発性薬剤との組合せは非常に多いが数例のみを挙げる。Roark & Cotton (1930) は Ethylene

dichloride と 2 硫化炭素とを容積比 3:1 に混じ、1000 立方 feet に就き、6 立の割合で殺虫効果を挙げた。Gunderson (1940) は *T. confusum* の成虫を用い、30°C 2 時間曝露で Ether と 2 硫化炭素、4 鹽化炭素、醋酸エチルを添加した混合瓦斯の毒力を検定した。

(綜説 I. p. 47)

Richardson (1943) はトコジラミの卵、幼虫、成虫の驅除に容積比で 3:1 の Ethylene oxide と Ethylene dichloride との混合瓦斯を用いた。その結果は単独に用いたものより毒性は遙かに減少した。又 Canberra の昆虫学報告 (1944) は貯蔵小麦害虫の驅除に容積比 3:1 の Ethylene dichloride + Trichloroethylene を用い、効果を挙げたことを報じている。Glass (1944, b) はイエバイ *Musca domestica* に容積比 50:50 で Trichloroacetonitrile + Acrylonitrile の混合瓦斯を用い、効果を挙げた。その燻蒸は 100 立方 feet 当り 1 pound の薬量で 12 時間曝露した。その後 Glass (1944 a) は *T. confusum* に対し、容積比で 7:3 の割合でこの混合瓦斯を用い、Acrylonitrile +  $CCl_4$  (容積比 5:5) より有効な結果を得、温湿度に影響され難く小麦粉中に深く滲透することを見出した。

Swisher (1944) は亜硫酸瓦斯と Acetone 及び Ethylene oxide と亜硫酸瓦斯との混合物を用い、連合作用を研究した。(綜説 I. p. 49) その結果は単独成分の場合と比較し、Bliss (1939) 及び Finney (1942) の方法で連合作用の型を考察した。亜硫酸瓦斯 + Acetone の混合瓦斯の 1:20, 1:30, 1:40, 1:50 及び亜硫酸瓦斯 + Ethylene oxide の 1:5 では Similar Joint Action が認められ、何れの組合せも Bliss (1939) の検定法では協力作用は認められなかつた。1:30 の亜硫酸瓦斯 + Acetone 混合瓦斯即ち 4 mg/L の亜硫酸瓦斯と 120 mg/L の Acetone との混合瓦斯は夫々の単独死亡率 5.4%, 4.1% に対し 89.5% の死亡率を示した。これは一般的には協力作用と認めて良いと考えるが Bliss (1939) の検定法では Similar Joint Action となる。その後 Swisher (1944 b) はこの混合瓦斯を衛生害虫の驅除に適用した。トコジラミの卵、成虫に対する追試結果では成虫は卵の 1/2 時間で斃死した。実用的に、この混合瓦斯は 1000 立方 feet に対し 2 立の割合で 8 時間燻蒸することを提唱し、又この瓦斯が衣類や金属に被害のないことを認めた。Parkin (1945) は容積比で 3:1 の Ethylene dichloride + Tetrachlorethylene との混合物を用いたが、その後 Welton & Mills (1946) は同様な混合瓦斯をナガシクイの驅除に適用し、良好な結果を得たが、実的に倉庫燻蒸では種々不規則な結果が認められたと報じた。土壌害虫驅除は最近 D-D 混合物が発見さ

れ、多数の試験結果が公表されている。Lincoln (1942) は容積比 5:5 の臭化メチルと Dichlorethyl ether との混合物を乳濁液として土壌燻蒸剤として用い、その後 Lincoln, Schwardt & Palm (1942) は Alfalfa の害虫 *Brachyichinus ligustici* の驅除にこの混合物を追試し好結果を得た。

Lange (1945) は針金虫類の驅除に D-D 混合物及び Ethylene dibromide を用い、有効なことを認めた。Mason & Chisholm (1945) はマメコガネの卵、幼虫、蛹及び地下の成虫の驅除に、Ethylene dibromide と Ethylene dichloride との混合剤を用い、表面活性剤として Polyoxyallylene 誘導体の Sorbitan monolaurate を添加した。この混合物は重量比で 62:36:2 に混合し、必要濃度 (1 乃至 2 容) の水で乳剤化した後稀釈して用いた結果、幼虫は処理後 1 週間で殆んど斃死した。その他 Naphthalene, Paradichlorobenzene や樟腦の夫々の混合剤は古くから廣く用いられている。衣類、温室、衛生害虫に対する驅除試験は Bourine & Whitcomb (1932), Sullivan, McGovern & Goodhue (1941), Anon (1943), Schwarcz (1946), Crowley (1930), Mallis (1945) 等多数の研究成績がある。

## 2). 接觸劑相互の組合せ

接觸劑を相互に組合せることは枚挙に暇がないが、此處では最近に於ける主なる例証と補助劑を添加した場合のみを挙げるに止める。DDT, BHC, 除虫菊粉、硫酸ニコチンに硫黄及び各種の油を混合することは最も普通に行われ、その効果は種々の場合に認められている。Fisher & Shull (1942) はメクラカメムシ類 *Lygus* の驅除に除虫菊と 硫黄との混合粉の良好なことを認め、その後 Sorenson (1945) によつて追試された。Medler & O'Neal (1944) はメクラカメムシ科 *Miridae* 及びカメムシ科 *Pentatomidae* の驅除に 0.5% Pyrethrin 含有の除虫菊粉と 325 mesh の硫黄華とを混合して効果を挙げ、又 0.75% Rotenone 含有のデリス剤に硫黄華を混合し有効な結果を得た。Thomas (1945) はイチゴハナゾウムシの 1 種 *Anthonomus signatus* を驅除するため、除虫菊粉と 17% の Potassium hexafluoroaluminate を含有した硫黄華とを混合し、除虫菊と Clay とを混じしたものより有効な結果を報じた。Brannon (1945) はクロバークのシャクトリムシの驅除に 0.5% Pyrethrin 含有の除虫菊粉と硫黄華との混粉を用いた。Stevenson (1945) は棉を加害するカメムシ科及びメクラカメムシ科の害虫に対し DDT と硫黄華とを 4:60 に混合し、acre 当り 30 pounds 撒布し、砒酸石灰と硫黄華との混合粉より優れていることを認めた。Fisher & Stanley (1945) はカメムシの 1 種 *Murgantia histrionica* の成虫の

駆除に *Sabadilla* に硫黄華、葉蠟石 *Pyrophyllite* を acre 当り 35 pounds の割合で撒布し効果を挙げた。DDT, BHC, Rotenone, 除虫菊剤, 硫酸ニコチン を夫々相互に混合して施用する例証も又夥しい。LePelly & Sullivan (1936) は Gnadinger & Corl (1932) に次いで、除虫菊が昆虫体に急速な麻痺を起し、その後蘇生し易い薬理作用を持ち、これに反し、Rotenone は必殺的遅効性を有することに著眼し、両者を組合せて、統計的な効果を挙げることを期待した。実験は Peet-Grady 法及び廻轉盤法でイエバイを用い、両剤の単独、混合物に就いて行い、処理後3日目の死亡率を調査した。除虫菊は 14.5% の Pyrethrin I, 14.7% の Pyrethrin II を含有する試料を用ひ、両剤は容積比で 50:50 及び 25:75 に混合し、Ethyl alcohol 溶液とした。その結果は顯著な拮抗作用も協力作用も認められず、附加的なものであつた。McDougall & Howles (1925) は Nicotine と Rotenone との合剤が有効なことを認め、特許を取り、Schotte & Göhritz (1935), Dudley & Bronson (1936) もこの合剤がマメヒゲナガアブラ *Acyrtosiphon pisi* に協力作用のあることを認めた。Brook & Allen (1940) はキャベツの害虫タマナコナフキアブラ *Brevicoryne brassicae* 及びモンシロチョウ *Pieris rapae* を駆除する目的で Derris と Nicotine との混合粉を撒布した。その1日及び5日後の結果は硫酸ニコチンの死亡率以上には出なかつた。Lilley (1943) はマメヒゲナガアブラ *A. pisi* の駆除に Nicotine と Rotenone との混合物 Blends を用いた。その結果は協力効果を認めることが出来た。この混合物の不活性物質は Bentonite; Clay より葉蠟石が用いられた。Marrison (1943) はシヨウジョウバイ *Dro. ophila melanogaster* を用いて硫酸ニコチンと Saponin との混合物を試験した。その浸漬結果は棲息密度、幼成虫の栄養の相違等により異つたが、協力作用が認められた。Siegler & Bowen (1947) は煙草中に含有される Nicotine, Nornicotine, Anabasine を相互に混合してマドリン蛾 *Cydia pomonella* に対する協力作用を試験したが、何れも協力作用を示さなかつたと報じた。

Brann (1946) は DDT に色々の薬剤を組合せてマドリン蛾の駆除を試みた。DDT に Xanthone を混合した。又 DDT に固定ニコチンを混じたものは真好で、撒布後も殺効があつた。Steiner, Summerland & Fahey (1946) もマドリン蛾の駆除に DDT と Dinitro-ortho-cresol とを混合した粉剤や、DDT と硫酸ニコチン及び Mississippi bentonite を混合した粉剤を使用し、好結果を得た。Medler & Chamberlin (1948) は DDT と *Sabadilla*, DDT と BHC との

混合液を使用しクロバー種子の収穫を増加した。その後 Medler & Thompson (1949) は DDT と *Sabadilla* 混合液の協力作用を証明した。Turner & Saunders (1947) は玉蜀黍を侵害するアノメイガ *Pyrausta nubilalis* の防除に DDT と Nicotine との混合粉の協力作用の可能性を研究した。その結果、3部の DDT と1部の Nicotine を含有する粉剤及び両者を等量に含有する (2%, 4%, 8%) 粉剤は何れも DDT のみより毒性が弱かつた。然し、1部の DDT と3部の Nicotine との混合粉は協力的効果が見られたが、統計的に意義を見出し得なかつた。Friend (1946) は花椰菜を加害するタマナコナフキアブラやヒメナガカメムシの1種 *Nysius vinitor* に対して、1及び2% の BHC 及び 0.5% BHC+0.5% DDT (重量比)、1% DDT を夫々施用したが、DDT と BHC とを添加した粉剤は1% DDT より何れの害虫にも不良であつた。Brannon (1947) はテントウムシの1種 *Epilachna varivestis* 及びバガの1種 *Heliothis armigera* に対し、1乃至3% の DDT+0.5% Rotenone+50% の葉蠟石中の硫黄華の混合剤を撒布した結果、*E. varivestis* には有効であつた。又 3% DDT+3% Derris resins+3% 機械油+10% Isophorone+31% Acetone+50% Methyl chloride の煙霧質を撒布した結果、*H. armigera* には有効であつたが、*E. varivestis* には効果がなかつたと報じた。Wilson, Hull & Srivastava (1947) はマメヒゲナガアブラの防除試験を DDT, BHC, Rotenone を用いて施行した。1乃至2% DDT+0.5% Rotenone+3% の SAE 10 機械油と Propylene laurate との混合油は完全に駆除し得た。又 1乃至2% の BHC+0.25% Rotenone+3% の混合油は DDT 混合剤より効果がなく、48 乃至 76% の死亡率を示した。何れの場合も Rotenone を添加すると軽い協力作用があると報じているが、2.5% 乃至 3% DDT 単独粉剤の方がこれらの混合剤より有効な結果を得ている。最近 Sun (1948) は蚜虫類に Chlordan+Nicotine の混合粉が両剤の単用より優れていることを報告した。接触剤、毒剤に各種の油を混合すると、殺虫剤としての物理性乃至化学性が促進することは古くから知られている。これは嚴密には協力作用と言えないが少くとも相容的な性質を具えている。Martin & Tattersfield (1939) は Nicotine に鱈油、植物油を混用すると効果の増大することを認めた。McConnell (1942) は蛾の1種 *Coleophora malivorella* の卵、幼虫の防除に、硫酸ニコチンや固定ニコチン (100 U.S. gallons 当り Black Leaf 155 を 4 pounds) と Summer oil との乳濁液とを混合して効果を挙げた。Ebeling (1941), De Toledo (1945) 等は殺虫剤に油類を添加すると分

散力、滲透力を増大することを認めている。Alexander (1944) は Nicotine bentonite にオレイン酸を添加し、その分散力を促進させた。Barber (1942) は玉蜀黍を害する *H. armigera* の駆除に除虫菊抽出液を用い、これに鉱油や Dichloroethyl ether を添加した。鉱油のみでは、大型の幼虫には効果がなかつたが、混合物は速かに幼虫を駆除することが出来た。その後 Barber (1943) は3者を色々に組合せて、この試験を追試し、0.1% Pyrethrin+2% Dichloroethyl ether が有効なことを認めた。Yother & Carlson (1944) はコドリン蛾の防除に就いて、1936 年以來 250 回に亘る試験を行い、5% の除虫菊抽出液(重量比で 2.5% Pyrethrin 含有)に 5 乃至 10% の棉実油を Blood albumen で乳化したものを添加した混合剤が優良であると報じた。Tenhet (1945) は煙草のタバコシバンムシや *E. elutella* の駆除に除虫菊抽出液と胡麻油又は Kerosene とを混じたものや、油に Butyl thiocyanate を混じたものを使用し、効果を挙げた。又 10% の DDT の Acetone 溶液を使用し、24 時間後に 89.5% の死亡率を得た。Hely (1945) はオレンジ樹を侵害するミカンノサビダニの1種 *Aceria sheldoni* に 0.1% DDT+White oil 乳濁液を撒布した。この混合液はオレンジ樹の發育を刺激し、又、カイガラムシに対しても White oil やコロイド硫黄より優秀であると報じた。Potts, Bronson, Latta & Poos (1945) はマメヒゲナガアブラの駆除に DDT+Cyclohexanone+機械油(S. A. E 10)+Kerosene (20:20:15:45) を撒布し、良好な結果を得た。Smith (1945) は温室のネギノアザミウマ *Thrips tabaci* や ベルシヤアブラ *Myzus persicae* の駆除に 3% DDT+5% Cyclohexanone+5% 機械油+87% Dichlorodifluoromethane (Freon-12) を混じた DDT 煙霧質を用い、好結果を得た。Kearns, Marsh & Martin (1945) は苹果を害するアブラムシの1種 *Amuraphis roseus* やアカダニの1種 *Paratetranychus pilosus* の駆除に DDT の3混合物を作り、何れも DDT 単独施用の場合より有効なことを見出した。即ち 1 pound DDT+4 ounces の Coumarone resin を 1 gallon の Summer oil (又は Winter oil) に溶かし、0.5 gallon 75% の Sulphite lye で乳化し、100 gallon の水に稀釈した混合液等を用いた。Steiner, Summerland & Fahey (1946), Brann (1946) は夫々コドリン蛾の駆除に DDT に油を添加したものを使用し、Wilson, Hull & Srivastava (1947) はマメヒゲナガアブラの駆除に 1 乃至 5% の BHC+3% 機械油を使用し、24 時間後夫々 93 乃至 100% 及び 24 乃至 84% の死亡率を得た。Alexander (1942) はアカダニの1種 *P. pilosus* の越冬卵の駆除に Dinitro-ortho-cyclohexylphenol

や Dinitro-ortho-cresol と油とを添加した乳化物を用い、効果を挙げた。Brown, Robinson, Hurtig & Wenner (1948) はコキブリの1種 *Blattella germanica* や *T. confusum* に Benzen+Kerosene 混合物を用い、その作用を M. L. D. で比較した。油を添加して殺虫力を促進することは最近除虫菊剤に就いて最も研究されている。

### 3) 除虫菊剤の協力剤

第2次世界大戦により、米國は除虫菊輸入の道を遮断された結果、Pyrethrin の代用薬剤発見の研究及びこの經濟的使用法の2研究傾向が出来て、何れもその成果を挙げた。第1の研究は Harvill & Arthur (1943) や Synerholm & Hartzell (1945) La Forge (1944) 等に依つて遂行され Cinerin I, II の発見及び合成となつた。第2の研究は第1の研究の副産物として Alkaloid piperine, Piperonyl cyclohexane や Piperonyl Butoxide 等の協力剤を見出した。この協力剤に就いては最近松原 (1949) に依つて紹介されているので、此處では出来る限り重複を避けた。最近の Entoma (1947) 等に見る様に、これらの協力剤の一部は既に商業的に發展した。協力剤として胡麻油はこの目的のために最初に注目された。

Eagleson (1940) は胡麻油を除虫菊、Rotenone を含んだ殺虫剤の協力剤として特許を得た。Haller, McGowan, Goodhue & Sullivan (1942) は胡麻油の有効成分 Sesamin を除虫菊-Kerosene 溶液に混合してイエバイを防除した。その報告に據れば、除虫菊-Kerosene 溶液に容積比で 0.5% の胡麻油を添加したものはイエバイの麻痺を 74% 増加させ、5% の添加は 95% の麻痺を示した。除虫菊の Kerosene 及び 10% Acetone 添加の溶液に Sesamin の結晶及び非結晶残渣 (2.5 mg per C.C.) を添加した場合、明瞭な協力作用が見られた。即ち 24 時間後のイエバイの死亡率は Pyrethrin 単独のものは 20%, Sesamin の結晶単独の時は 3%, Pyrethrin+結晶 Sesamin は 85%, Pyrethrin+非結晶残渣の場合は 89% で、単独のものよりも 69% の増加を示した。又他の植物油を除虫菊に添加したが、その効果は認められなかつた。Haller, LaForge & Sullivan (1942) は更に研究を發展させ、胡麻油中の Sesamin 誘導体の構造を研究し、その除虫菊に対する協力作用を調査した。除虫菊+Kerosene+10% Acetone 溶液に Sesamin, Iso-sesamin, Asarinin, Pinoresinol, Dimethyl pinoresinol を添加し、24 時間後のイエバイの死亡率を調査した。これらの胡麻油成分単独の死亡率は 1% 乃至 18% であつたが、除虫菊にこれらを添加した場合は除虫菊単独の死亡率 25% (Sesamin 誘導体に用いた場合の標準液) 及び 19% (Pinoresinol 誘導体の場合) に比し、



滴かに促れていた。除虫菊の協力剤として作用するものは Sesamin 誘導体であり、Pinoresinol 誘導体は全然無効であつた。除虫菊に 0.2% 添加の Sesamin, Isosamin, Asarinin の死亡率は除虫菊単独のものに比較し、夫々、59%, 62%, 63% の増加を示した。最近の Soap & San. Chem. 誌 (1949) には Piperonyl Butoxide を含有するものを Pyrin PB (John Powell 会社), Sesamin を含有するものを Pyrin (John Powell 会社), 等と銘柄を附し、Van Dyk 会社では Van Dyk 264 と呼んで商品化している。又 Asarinin は 3, 4-Methylene dioxyphenyl 基を添加させたものが用いられている。他方、米國ではヒマシ油利用に刺激され、ある種の Amide 類が協力剤として研究され、Isobutylundecylamide, N, N-diethyl-piperonylamide 等が発見された。Gertler et al. (1941) 及び Gersdorff & Gertler (1944) の報告に依ると、イエバイの驅除に除虫菊と N, N-diethyl-piperonylamide を添加したものは顯著な協力作用があると指摘された。又 David & Bracey (1944) は蚊の 1 種 *Aedes aegypti* の防除に Pyrethrin と N-isobutylundecylamide が顯著な協力作用があると報じた。Weigel & Gertler (1945) は数種の薬剤の Pyrethrum marc に対する協力作用を研究した。実験は粉剤で行い、単独及び混合物の温室及び圃場試験を行い、テントウムシの 1 種 *E. varivestis* の第 3 齡虫を用いた。温室試験には、4 inches の鉢に生育する蠶豆 (品種 Cranberry) 上の幼虫に対し、撒布し、撒布後植物を Celluloid の Cage で蔽い、死亡率は 93 時間後に調査した。粉剤は 60% の Pyrethrum marc + 38% 葉蠟石 + 2% の試験化合物より成っている。1-chloro-2-(2, 3, 4, 6-(tetrachloro-phenoxy) ethoxy] ethane 及び N, N-diethyl piperonylamide を添加した粉剤では、前者は蘇生回復し後者では 96% が 93 時間後に死亡し、その後全滅した。又燻蒸効果を避けるために、Cage なしの植物上の幼虫に対しても後者が優れ、単独の死亡率 12% に比し、50% の増加を示した。又その他の化合物のうち、N-amybenzamide は Pyrethrum marc 単独の死亡率 17% に対し、50% を示し、N-butylbenzamide 32%, N-isobutylundecylamide 22%, 4-Methylcyclohexane semicarbazone 15%, Pinere の Ethylene glycol ether 17% を示し、何れも効果がなかつた。又 2-4 methylene dioxy benzyl-n-propyl ether 及び  $\alpha$ -(n-propyl) piperidine は死亡率を促進したが藥害が激しいために実用に供することは出来なかつた。この実験では Isobutylundecylamide の効果は認められなかつた。その後 Lindquist et al. (1947) は除虫菊撒布前後に胡椒油、Piperonyl cyclonene

や Isobutylundecylamide を撒布すると有効なことを見出した。Hamilton (1948), Wilson (1949) も除虫菊に Piperonyl Cyclonene, Piperonyl Butoxide を添加すると有効なことを見出し、Wilson (1949) は個体的にイエバイの体の各部 (例えば、胸部先端、胸部氣門、口器) に除虫菊-Kerosene 溶液単独及び両協力剤を添加した場合とを比較した。これらの協力剤添加と除虫菊単用との場合の組織学的研究は Hartzell 及びその共同研究者 (1942 以後) Richards & Cutkomp (1945) や Hoskins & Craig (1946) 等に依つて發表している。Hartzell & Scudder (1942) は除虫菊と Isobutylundecylamide とを単独及び混合してイエバイの神経及びその他の組織に作用させ、その病理学的変化を研究した。既に除虫菊剤單粗の組織学的研究は多くの研究者に依つて遂行されている。例えば、Krüger (1931) は除虫菊懸濁液に蚊の 1 種の *Coretha* の幼虫の眞皮、筋肉、及び神経の形態学的変化を研究し、腹部神経球に空胞を觀察した。除虫菊溶液に依るチャイロゴムシダマシの幼虫及びバツタの 1 種 *M. f. mur-rubrum* の成虫の神経傷害は Hartzell & Wilcoxon (1933, 1934), Hartzell (1934) に依つて觀察された。この傷害の調査には Sudan III, Eosin 及び Toluidine blue 等で染色する。Toluidine blue に依る研究では、傷害は中枢神経組織の主要部即ち、腦、食道下神経球、胸部神経球、腹部神経球及びその連絡系に認められた。除虫菊に依る致死は痙攣による中枢神経系の破損に原因すると結論された。除虫菊様の神経傷害は Triorthocresyl phosphate や有機の Thiocyanates に認められるが、Rotenone に依つて殺された昆虫には見ることが出来ない。更に、除虫菊抽出液と Sudan III との混合液を外用すると氷結切片の檢定により、毛生外皮細胞や毛細胞を通して神経末端に達していることが認められる。Klinger (1935) は除虫菊抽出液をマイマイ蛾 *Porthetria dispar* の幼虫に作用させ、その組織的神経傷害を検した外、Galvanometer によつて、除虫菊作用の神経刺激を測定し、正常神経の流れの約 1/5 なることを認めた。石油に依つて殺された蚊 *Culex* の幼虫に就て Richards (1941) は中枢神経系の核染色粒の凝集を証明した。これらの研究に基礎付けられて、Hartzell & Scudder (1942) は Peet-Grady 法により、羽化後 5 日のイエバイの成虫を除虫菊及び Isobutylundecylamide とその両者の混合物に 4 時間曝露させた。

致死の蠅は 70°C の Bouin, Dietrich 又は Gilson 固定液に浸し、N-butylalcohol で脱水し、更に 60 乃至 62 度の Paraffin で埋没し、7 $\mu$  に切り、鉄 Haematoxylin 及び Erythrosin で染色した。腦の切片は Silver albumose と Gold chloride 法で染色した。

除虫菊で処理したイエバイの病理的变化は種々の核の染色質の凝集で示された。即ち、脳の神経纖維索は正常のものに比較し、顯著に損傷された。複眼の網膜杆状体、胸部の複合神経球は染色質の凝集を起し、核に空胞を認めることが出来た。脳の末端部、Caudal part の筋纖維束の基部 Proboscis には異常をきたし、核の凝集が見られ、筋肉は一般に染色性を消失した。又頭部の脂肪細胞は分離し易く、一般的凝集が見られた。その他、体の多くの部分にも除虫菊の影響が見られ、マルピギー氏管、消化管の絨毛にも異常が観察された。次に協力剤 Isobutylundecyleneamide のイエバイに対する影響は除虫菊のそれと対比している。除虫菊が染色粒の凝集作用を持つに反し、協力剤は染色質分散 Chromatolysis を起す。殊に脂肪細胞の核に顯著であり、筋肉の染色性は除虫菊の様に消失せず、視覚、気管部にも協力剤特有の異常が見られ、気管の浸透に影響を与えることが暗示された。更に、両剤の混合物の影響は除虫菊の凝集と協力剤の分散との総計的な組織図を認めることが出来た。その後 Hartzell (1945, 1946) は除虫菊に Piperonyl 化合物を添加したイエバイの組織研究をした。その場合、脳の比較的大きな神経細胞は空胞化 Vacuolation し、横紋筋の筋及び Krause 氏膜には深い亢進が観察された。これらの研究はその後 Richards & Cutkomp (1945), Hoskins & Craig (1946) に依つて検討された。

これらの組織的变化の結果を直ちに両薬剤の影響と断定するは困難なごとと考えられるが、この発展的研究の手法は連合作用研究に充分取り入れる價值がある。

#### 4). 消化中毒相互の組合せ

この組合せは余り施行されていない。古く、Kerr & Smith (1925) は珪弗化曹達に砒酸石灰又は Paris green を混合した合剤を作成し、夫々の成分を単用した時より遙かに藥害を惹き起した。然し、酸性砒酸鉛を添加した時は藥害は認められなかつた。最近砒酸石灰、酸性砒酸鉛、砒酸銅、Paris green、亞砒酸等が相互に混用されている。Ewing & Moreland (1942) は棉を加害するヤガの 1 種 *Harmigera* の驅除に砒酸石灰と Paris green (容積比 92.5:7.5) を使用し、有効な結果を得た。Grayson (1944) は煙草を加害するノミハムシの 1 種 *Epitrix hirtipennis* の驅除に Paris green+砒酸石灰 (1:5) の混合物を 100 平方 Yards 当り、1/2 Pound 使用し、有効な結果を得た。Apple & Richardson (1944) は Copper hydroarsenate と亞砒酸との混合物をモンシロチョウ *Prapae*, *Harmigera* 等を使用し、単用の時より有効な結果を得た。この混合物は忌避効果を持ち、他の砒素剤より藥害が少なかつた。Scott (1945) も Paris green と

砒酸石灰との合剤を用い、Bondy & Rainwater (1947) はワタハナゾウムシ *A. grandis* の防除に砒酸石灰と Paris green, 砒酸マグネシウム、塩基性砒酸銅を夫々等量に混合した合剤を使用し、効果を挙げたが何れも藥害があつた。一般に砒素剤相互の混合は濕気に遭うと水溶性砒素を遊離し易く、藥害を伴うことが多い。

#### 5). 接觸剤と消化中毒剤との組合せ

砒素剤に石灰硫黄合剤を混合することは古くから行われ、その化学的研究もなされている。これらに就いては Wardle (1929) に詳論されている。最近砒素剤と硫黄、Nicotine, Rotenone DDT 等が混用されている。Fisher & Shull (1942) は Alfalfa を害するメクラカメムシの防除に砒酸曹達と硫黄華との混合物を用い、良結果を得た。Rainwater (1942) は棉を加害するワタハナゾウムシ *A. grandis* に対して、砒酸石灰と 0.25% の Rotenone を含有した硫黄華との混合物を使用し、砒酸石灰単用より有効な結果を得た。Smith (1942) は棉のメクラカメムシの 1 種 *Lugus hesperus* の驅除に砒酸石灰及び Paris green に夫々硫黄華を混じた粉剤を使用し、幼虫の驅除に成功した。Beckel (1942) は棉の害虫 *Psallus scriatus* の防除に 325 mesh の硫黄華単用及び硫黄華+砒酸石灰及び硫黄華 93+Paris green 7 を使用したが、硫黄華単用の方が Paris green との混合粉より有効であつた。更に硫黄華 4+Cryolite 1+砒酸鉛 1 をも用いた。Hamilton (1944) は苹果を侵害するコドリシ蛾の防除に混合粉剤の試験を行い、その結果を無被害果比で表わした。砒酸鉛 20+硫黄 30, 砒酸鉛 20+粘度 100 の Soybolt 油 2+硫黄華 78 の無被害果は夫々 82.4%, 88.5% であつた。これらの結果は砒酸鉛 20+14% 固定ニコチン 20+硫黄華 60 より劣つていた。Gaines (1944) はワタアブラ *Aphis gossypii* の驅除に砒酸石灰に 20% の硫黄華を添加したものを使用し、Fife (1944) はワタハナゾウムシ *A. grandis* とワタアブラとの驅除に砒酸石灰と硫黄華とを混用し、Harman (1944) はコドリシ蛾に砒酸鉛と硫黄華とを 20:80 に混じた粉剤を使用した。効果がなかつた。Stevenson (1945) は棉のガメムシ類に 7.5 Paris green+92.5 硫黄華, 15 Paris green+85 硫黄華, 33.3 鹽基性砒酸銅+66.7 硫黄華, 10 砒酸石灰+90 硫黄華等を夫々 acre 当り 20 pounds を手動撒粉機で撒布した結果、何れも 4 DDT+60 硫黄華+36 葉蠟石より効果がなかつた。Thomas (1945) はハナゾウムシの 1 種 *A. signatus* の防除に、砒酸鉛の単独粉剤及び種々の割合に硫黄華を混じた混合粉を用いたが、充分な結果は得られなかつた。その中で、砒酸鉛+硫黄華 (1:5) は比較的良好であつた。Gaines (1941, 1943) はヤガの 1 種 *H. armigera*, *A. gr-*

*andis* の駆除に 85 Cryolite + 15 硫黄華を acre 当り、9 pounds の割合で撒粉したが、硫酸石灰の方が優れていることを報告した。Rainwater (1941) は棉の *A. grandis* 及びワタアブラの防除に等量の硫酸石灰と固定ニコチンとの混合粉を用い、効果を挙げた。Floy, Beemel & Eddy (1942) は *A. grandis* とワタアブラとの駆除に硫酸石灰に Black leaf 10. からの 1% Nicotine を添加した粉剤を使用し、有効な結果を得た。Chamberlin (1944) はヤサイゾウムシの一種 *Listroderes obliquus* の駆除に、硫酸鉛+煙草粉 (5:5) や Cryolite+煙草粉 (8:2) を與え、有効な結果を得た。Harman (1944) はコドリン蛾の駆除に硫酸鉛+固定ニコチン+硫黄華 (20:20:60 又は 15:10:75) の混合粉を用いた。Gaines (1944) はワタアブラとその他の棉害虫に対し硫酸石灰に種々の混合物を試験した結果、2% の Nicotine を含有した硫酸石灰を反復使用することを認めた。Young, Smith & Gaines (1945) もワタアブラの駆除に硫酸石灰と Nicotine との混合粉を使用した。Gaines (1943) は硫酸石灰と Rotenone との混合粉が *H. armigera* の駆除に硫酸石灰単用より有効なことを報じた。その後 Gaines (1944) は硫酸石灰に Rotenone を添加して効果がなかつたと報じたが、Bondy & Rainwater (1945) は棉の *A. grandis* に硫酸石灰と 0.75% Rotenone の合剤を使用し有効なことを認めた。又、ワタアブラに硫酸石灰+1% Nicotine (Black leaf 40), 硫酸石灰+14% Aliphatic thiocyanate (Lethane B-71) を使用したが無効であつた。最近では砒素剤に DDT を混合することが行われている。Brann (1946) はコドリン蛾の駆除に DDT+硫酸鉛+葉蠟石を用いたが、残効に依り葉害を生じた。Chandler (1946) は同じ

くこの蛾の駆除に DDT+硫酸鉛を用い、DDT 単用より優れていることを見出した。Kowal & St. George (1948) は白蟻の駆除に硫酸鉛、非弗化曹達、亜硫酸曹達、Cryolite 及び Trichlorobenzene に 5% の Pentachlorophenol を混合した。その結果、亜硫酸曹達が最も有効であつた。

Snyder & Zeterk (1943) も白蟻から木材を保護するために、25 非弗化曹達+37 1/2 Sodium chromate+25 Anhydrous disodium arsenate+12 1/2 Dinitrophenol を用い効果を挙げた。

### 3. 結 語

連合作用の研究はまだ端緒に着いた許りで、この綜説は (I—II) 不十分乍らも、連合作用の観点に立脚した殺虫剤の組合せの研究報告が極めて少ないことを物語っている。各方面の殺虫剤関係者は現在も尙不十分な組合せが行われていることを考えると共に、組合せに際して昆虫毒物学に立脚した連合作用の理論に注目すべきであろう。この考察は理論的に興味がある許りでなく、やがて、新殺虫剤発見の途であり、又、殺虫剤の改良となるだろう。ここで掲載した組合せ以外に、煙蒸剤と消化中毒剤及び接触剤との組合せがあるが、實際的例証に乏しいので省略した。又忌避剤、誘引剤、補助剤、増量剤に就いては Starr (1944), Eyer (1945), Walton & Whitehead (1945) 等が報告した。又殺菌剤と殺虫剤との組合せには触れなかつた。終に臨んで、懇篤な御指導と御校閲の勞を執られた内田俊郎教授に深謝すると共に有益な助言を賜つた農林省農薬検査所長上遠章技官その他の諸氏に厚く御礼申上げる。

### 4. 文 献

(JEE は Journal of Economic Entomology の略稱)

- Alexander, G. P. (1942): Bull. Mass. Agr. Exp. Sta. 398; 50—66. Alexander, C. C., C. C. Cassil, E. P. Dean & E. J. Newcomer (1944): JEE. 37. 610—17. Alvarez Aparicio, J. (1943): Publ. Direcc. Agric. Territ. esp. Golfo Guinea, 7 (Bol. 1943), 61—75. Annand, P. M. (1942): U. S. Dep. Agr., Wash. Rep. Chief Bureau. Ent. & Plant Quar. 19, 120 P. Anon (1943): Wash. Am. Pharm. Assoc. 417. Apple, J. W. & C. H. Richardson (1944): JEE. 37. 666—71. Back, E. A., R. T. Cotton, & G. W. Ellington (1930): JEE. 23. 226—31. Balzer, A. I. (1942): Fmr's Bul. U. S. Dep. Agr. 1906, 22. Barber, G. W. (1942): Cir. U. S. Dep. Agr. 657, 15 P. — (1943): JEE. 36. 481. Beemel, I. J. (1942): Bull. La. Agric. Exp. St. 350, 3—9. Bennett, H. (1945): N. Y. Chem. Pub. Co., 4. 113:5, 497:8, 8. Bondy, F. F. & C. F. Rainwater, (1945): 57th Rep. S. Carolina Exp. Sta. 99—104. Bourne, A. T. & W. D. Whitcomb (1932): Bull. Massach. Agr. Exp. Stat. 280. Bovington, H. H. S. & F. P. Coyne (1944): Ann. Appl. Biol. 31, 255—59. Brann, Jr. J. L. (1946): Proc. N. Y. St. Hort. Soc. 91. 193—99. Brown, A. W. A., D. B. W. Robinson, H. Hurtig, & B. J. Wenner (1948): Canad. J. Res. Sect. D. Zool. Sci. 26, 177—96. Brannon, I. W. (1945): JEE. 38. 403—4. — (1947): JEE. 40. 103—

100. Brinley, F. J. & R. H. Baker (1927): Biol. Bull. 53, 201-7. Buckler, M. S. (1948): Milling Prod. Sec. (NSM): 235, 1a-27a. Campbell, A. F. (1932): JEE. 25, 476-80. Chakroverthy, S. (1943): Sci. & Cult. 9, 77-81. Chamberlin, F. S. (1944): JEE. 37, 293-94. Chandler, S. C. (1946): Trans. Ill. Hort. Soc. 79, 274-90. Coon, B. F. (1944): JEE. 37, 785-789. Cotton, R. T. (1930): JEE. 23, 231-33. — (1932): JEE. 25, 1088-1103. (1938): U.S. Dep. Agr. Farm. Bul. 1811, 14P. Cotton, R. T. & R. C. Bjark (1927): JEE. 20, 636. — (1928): Ind. Eng. Chem. 20, 380-82. Cotton, R. T., H. H. Walkden, & R. B. Schwartz (1944): J. Kans. Ent. Soc. 17, 93-103. Cotton, R. T. & H. H. Walkden (1946): JEE. 39, 529-531. Cotton, R. T. & H. D. Young (1929): Proc. Ent. Soc. Washington. 31, 97-102. — (1943): JEE. 36, 116-17. Cox, A. J. (1941): Calif. Dept. Agr. Spec. Pub. 184. Crowley, C. A. (1939): Money Mak. Form. Chicago, Pop. Mech. Press, 118-9. Cupples, H. L., H. R. Yust, & J. Hiley (1936): JEE. 29, 611-18. David, W. A. L. & P. Bracey (1944): Nature, 153, 594-5. DeLong, D. M. & G. L. McCall (1943): JEE. 36, 112-13. De Toledo, A. A. (1945): Biologico, 11(7), 177-81. Eagleson (1940): U. S. Patent, 2202145, may 28. Ebeling, W. (1941): JEE. 34, 829-37. Ent. Invest. (1944): 18th Rep. Coun. Sci. Industr. Res. Aust. 14-20. Ewing, K. P. & R. W. Moreland (1942): JEE. 35, 626-29. Ewing, K. P., C. R. Parencia in. & E. E. Ivy (1947): JEE. 40, 374-81. Eyer, J. R. (1945): JEE. 38, 344-46. Fife, L. C. (1944): JEE. 37, 19-21. Fisher, R. A. & W. E. Shull (1942): JEE. 35, 503-7. Fisher, E. H. & W. W. Stanley (1945): JEE. 38, 125-6. Floyd, E. H., I. J. Bernel & C. O. Eddy (1942): JEE. 35, 620-23. Friend, A. H. (1946): Agr. Gaz. N. S. W. 57, 181-82. Gadlun, J. H. (1943): Trans. Faraday Soc. 39, 328-33. Caines, J. C. (1941): JEE. 33, 515-518. — (1943): JEE. 36, 79-81. — (1944): JEE. 37, 728-9. Gersdorff, W. A. & S. I. Gertler (1944): Soap & Sanit. Chem. 20(2), 123, 125. Gertler, S. I., J. H. Fales & H. L. Haller (1943): Soap & Sanit. Chem. 19, 105, 107, 111. Glass, E. H. (1944): JEE. 37, 74-8 (b), 388-91(a). Goodhue, L. D. & F. F. Smith (1944): JEE. 37, 214-8. Grayson, J. W. (1944): JEE. 37, 224-30. Gunderson, H. (1940): Iowa sta. Col. J. Sci. 14, 405-17. Haller, H. L., E. R. McGovran, L. D. Goodhue & W. N. Sullivan (1942): J. Org. Chem. 7, 183-4. Haller, H. L., F. B. LaForge & W. N. Sullivan (1942): J. Org. Chem. 7(2), 185-8. Hamilton, D. W. (1944): Proc. N. Y. St. Hort. Soc. 89, 180-5. — (1948): JEE. 41, 244-8. Hansen, E. L., J. W. Hansen, & R. Craig (1944): JEE. 37, 853. Harman, S. W. (1944): JEE. 37, 203-11. Hartzell, A. (1934): Cont. Boyce Thomp. Inst. 6(2), 211-23. — (1945): ibid. 13(9), 443-54. Hartzell, A. & H. I. Scudder (1942): JEE. 35, 428-33. Hartzell, A. & F. Wexler (1946): Cont. Boyce Thomp. Inst. 14(3), 123-6. Hartzell, A. & F. Wilcoxon (1933): Travaux Ve Congr. Internat. d'Ent. 1932, 289-93. — & — (1934): Cont. Boyce Thomp. Inst. 6(3), 269-77. Harvill, E. K. & J. M. Arthur (1943): Cont. Boyce Thomp. Inst. 13, 79-86. Hazellhoff, E. H. (1926): Z. verg. Physiol. B5, 179. — (1928): JEE. 21, 790. Hely, P. C. (1945): Agric. Gaz. N. S. W. 56, 397-400. Hoskins, W. M. & R. Craig (1946): Ann. Rev. Biochem. 15, 539-72. Hutzel, J. M. (1942): JEE. 35, 929-33. Jefferson, R. N. (1943): JEE. 36, 253-9. Johnson, V. A. (1939): U. S. Patent, 2147947, Feb. 21. Jones, R. M. (1935): JEE. 28, 475. — (1938): JEE. 31, 298-309. Kearns, H. G. H., R. W. Marsh & H. Martin (1945): Rep. Agr. Hort. Res. Sta. Bristol, 132-40. Kitchel, R. L. & W. M. Hoskins (1935): JEE. 28, 924-33. Klinger, H. (1935): Arb. ü. Physiol. und Angew. Ent. aus Berlin-Dahlem. 3 (2), 115-51. Kowal, R. T. & R. A. St. George (1948): JEE. 41, 112-3. Krüger, F. (1931): Z. Ang. Ent. 18, 344-53. Lange, W. H. Jr. (1945): JEE. 38, 643-5. Le Pelley, R. H. & W. N. Sullivan (1936): JEE. 29, 791. Lilly, J. H. (1943): JEE. 36, 79-81. Lincoln, C. G. H. H. Schwar- rdt & C. E. Palm (1942): JEE. 35, 238-9. Lindquist, A. W., A. H. Madden, & H. C. Wilson (1947): JEE. 40(3): 426-7. Malls, A. (1945): Handbook of Pest Control, N. Y. Mac Nair-Dorland. Martin, J. T. & F. Tattersfield (1939): Chem. & Ind. 58, 635-40. Mason,

- A. C. & R. D. Chisholm (1945): JEE. 33, 717-8. 松原弘道 (1949): 農業及園藝, 24, 423-26.  
 McConnell, H. S. (1942): Bul. Maryland Agr. Exp. Sta. A7, 173-87. McGovran, E. R.  
 (1932): JEE. 25, 271-6. Medler, J. T. & E. J. O'Neal (1944): JEE. 37, 316-8. Medler,  
 J. T. & T. R. Chamberlin (1948): JEE. 41, 103-9. Mellanby, K. (1934): JEE. 25, 271  
 -6. Medler, J. T. & H. E. Thompson (1949): J. Agr. Res. 78, 641-46. 三坂和英 (1943):  
 農藝, 2(1): 1-16. Morrison, F. O. (1943): Canad. J. Res. (D) 21, 35-75. Neifert, I.  
 E., F. C. Cook, R. C. Roark, R. C. Tonkin, E. A. Back, & R. T. Cotton (1925): U. S. Dept.  
 Agr. Bul. 1313. Parkin, E. A. (1945): Ann. Appl. Biol. 33, 97-103. Potts, S. F., T. E.  
 Bronson, R. Latta & F. W. Potts (1945): JEE. 33, 497. Pratt, F. S., A. F. Swain,  
 & D. N. Eldred (1933): JEE. 26, 1031-41. Rainwater, C. F. & F. F. Bondy (1941):  
 JEE. 34, 297-300. Rainwater, C. F. (1942): JEE. 35, 500-3. Richards, A. G. Jr.  
 (1941): Trans. Amer. Ent. Soc. 67, 161-96. Richards, A. G. Jr. & L. K. Cutkomp (1945):  
 J. N. Y. Ent. Soc. 53, 313-55. Richardson, C. H. (1946): JEE. 39, 593-607. Richard-  
 son, H. H. (1943): JEE. 36, 423-5. Richardson, H. H. & A. H. Casanges (1942): JEE. 35,  
 664-8. Richardson, C. H. & H. H. Walkden (1945): JEE. 38, 471-7. Roark, R. C. (1944):  
 JEE. 37, 302. Roark, R. C. & R. T. Cotton (1930): Tech. Bull. U.S. Dep. Agr. 162. 酒井清六  
 (1949): 防虫科学, 13, 42-52. Schwarcz, L. (1946): N. Y. Textile Res. Inst. 7-28. Scott,  
 L. B. (1945): JEE. 38, 464-6. Shepard, H. H. & D. L. Lindgren (1934): JEE. 27, 842-5.  
 Siegler, E. H. & C. V. Bowen. (1947): JEE. 40, 576-577. Stahn, I. (1928): Zool. Jahrb. Abt.  
 Zool. 40, 1-86. Starr, D. F. (1944): JEE. 37, 547. Steiner, C. F., S. A. Summerland & J.  
 E. Fahey (1946): U. S. Dep. Agr. Bur. Ent. (Washington D. C.) 4P. Stevenson, W. A. (194  
 5): JEE. 38, 531-3. Smith, G. L. (1942): Bull. Calif. Agr. Exp. Sta. 663, 50P. Smith, F. F.  
 & C. D. Goodhue (1945): JEE. 38, 173-9. Snyder, T. E. & J. Zeterk (1943): Circ. U. S.  
 Dep. Agr. 633, 24P. Sorenson, C. J. & J. W. Carlson (1945): Farm. & Home Sci. 6(3), 5P.  
 Sullivan, W. N., E. R. McGovran & L. D. Goodhue (1941): JEE. 34, 79-80. Sun, Y. P.  
 (1948): JEE. 41, 89-91. Swisher, E. M. (1944): JEE. 37, 690-7. Synerholm, M. C. & A.  
 Hartzell (1945): Cont. Boyce Thomp. Inst. 13, 433-42. Tenhet, J. N. (1945): JEE. 38, 449-  
 51. Thomas, W. A. (1945): JEE. 38, 678-82. Turner, N. G. & D. H. Saunders (1947): JEE.  
 40, 553-56. Wadley, F. M. (1945): U. S. Bur. Ent. & Pt. Quar. ET. 223, 6P. Walkden,  
 H. H. & R. B. Schwitzgebel (1946): JEE. 39, 449-59. Walton, R. R. & F. E. Whitehead  
 (1945): JEE. 38, 452-7. Welton, F. & A. T. Mills (1946): Bull. Coun. Sci. Industr. Res.  
 Aust. 208, 31P. Wilson, C. S. (1949): JEE. 42, 423-428. Wigglesworth, V. B. (1931): Biol.  
 Rev. & Proc. Camb. Philos. Soc. 6, 181-220. Weigel, C. A. & S. I. Certler (1945): JEE.  
 38, 683-6. Willis, J. A. (1925): Biol. Bul. 48, 209-23. Wilson, H. F., W. B. Hull, & A.  
 S. Srivastava (1947): JEE. 40, 101-3. Yother, M. A. & F. W. Carlson (1944): JEE. 37,  
 617-20. Young, M. T. G. L. Smith, G. C. Garrison & R. G. Gaines (1945): JEE. 38, 383-  
 4. Yust, H. R., R. L. Busbey & L. B. Howard (1942): JEE. 35, 521-4.

防 虫 科 学 第 13 號 正 誤 表

頁	個 所	誤	正
21	右列第1表最終行	CH <sub>3</sub> -DDT	OH-DDT
24	左列45行目	$\gamma$ -hepta <sup>6</sup>	$\gamma$ -hep'a
27	第1表29行目	3 amp.	4 amp
28	第2表	$3.09 \times 10^{-4}$ amp	$3.09 \times 10^{-8}$ amp
		5.2 sec drop	5.20 sec /drop
		0.66 mg sec	0.66 mg. /sec
52	左列38行目	22)	27)